

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平4-301391

(43)公開日 平成4年(1992)10月23日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	弁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 5 B 33/04		8815-3K		
C 0 9 K 11/08		Z 6917-4H		

審査請求 未請求 請求項の数5(全 8 頁)

(21)出願番号	特願平3-65168	(71)出願人	000002093 住友化学工業株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号
(22)出願日	平成3年(1991)3月29日	(72)発明者	藤井 秀世 愛媛県新居浜市惣開町5番1号 住友化学工業株式会社内
		(72)発明者	山口 登 千葉県市原市姉崎海岸5番1 住友化学工業株式会社内
		(74)代理人	弁理士 諸石 光▲ひろ▼ (外1名)

(54)【発明の名称】 耐湿性ELランプ

(57)【要約】

【構成】 背面電極上に絶縁層、発光層、透明電極層を積層してなるELランプにおいて、発光層に使用する発光体として無機耐水性物質で被覆した蛍光体を用い、かつ透明電極層より上面に (a) 吸水性物質よりなる層、(b) 50重量%以上のエチレン、3～50重量%の $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸および/またはその塩、及び0～40重量%のビニル基含有化合物を共重合させてなるエチレン共重合体からなる層および(c) 透明性汎用樹脂フィルムよりなる層を配設してなる耐湿性ELランプ。

【効果】 高価なポリクロロトリフルオロエチレンフィルムを用いなくとも、略同等の半減寿命を有する廉価なELランプが得られる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 背面電極上に絶縁層、発光層、透明電極層を積層してなるELランプにおいて、発光層に使用する蛍光体として無機耐水性物質で被覆した蛍光体を用い、かつ透明電極層より上面に（a）吸水性物質よりなる層、（b）50重量%以上のエチレン、3～50重量%の $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸及び／またはその塩、及び0～40重量%のビニル基含有化合物を共重合させてなるエチレン共重合体からなる層および（c）透明性汎用樹脂フィルムよりなる層を配設したことを特徴とする耐湿性ELランプ。

【請求項2】 透明性汎用樹脂フィルムがポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリ弗化ビニル、ポリ弗化ビニリデン、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリアミド、ポリアセタール、セルロースアセテート及びポリエステルより選ばれた少なくとも1種である請求項1記載の耐湿性ELランプ。

【請求項3】 無機耐水性物質がカルシウム、マグネシウム、バリウムおよびストロンチウムから選ばれた金属の少なくとも1種よりなるリン酸塩であることを特徴とする請求項1記載の耐湿性ELランプ。

【請求項4】 吸水性物質が高吸水性樹脂であることを特徴とする請求項1記載の耐湿性ELランプ。

【請求項5】 （b）のエチレン共重合体からなる層と透明性汎用樹脂フィルムとの間にエチレン- $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸エステル共重合体よりなる接着剤層を有することを特徴とする請求項1記載の耐湿性ELランプ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、有機分散型エレクトロルミネッセンス（以下ELと称する）ランプに関する。詳しくは、耐水性フィルムとしてポリクロトリフルオロエチレン（PCTFE）フィルムを使用しないで、無機耐水性物質で被覆処理した蛍光体を用い、特定物質よりなる複層フィルムでEL素子を被包しELランプを構成することによりPCTFEを用いたと同様の優れた耐湿性を有する安価で長寿命のELランプに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 近年、表示機器のバックライトや自動車用内外装パネルライトとして広面積に均一な輝度が得られること、軽量であること等の特徴より銅及び／または銀付活硫化亜鉛、銅及びマンガ付活硫化亜鉛や銅付活硫セレン化亜鉛等、主として硫化亜鉛を含有する硫化亜鉛系蛍光体を用いたELランプが賞用されている。

【0003】 蛍光体は、湿度に弱く外部より浸入する水分により、急激に輝度が低下するとの不都合を有する。それ故、従来使用されているELランプは、背面電極上

に絶縁層、高誘電性有機バインダーと蛍光体の混合物からなる発光層、及び透明電極層を配設して各電極層に通電用端子を接続し、EL素子を構成し、これに水分の侵入を防止すべくEL素子上にナイロン等の吸湿フィルムを配設し、さらにこの上よりEL素子全体を覆うようにPCTFE（ポリクロトリフルオロエチレン）フィルム等の防湿層で被包して使用されている。このものは半減寿命（40℃、98%RH雰囲気下、115V・400Hz駆動し連続点灯により初期輝度が半分の輝度になるまでの時間）が500時間以上、通常600時間程度であり、完璧ではないが実用に供し得る範囲とされている。

【0004】 このPCTFEフィルムは通常の透明性汎用樹脂フィルムに比較し、40℃-98%RHの高温高湿下での透湿度が通常0.1g/m<sup>2</sup>・24hr以下（250μm）と極めて低く防湿能に優れたものの、価格が極めて高いため製品としてのELランプの価格を高騰する要因となっている。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 かかる事情に鑑み、本発明者等は防湿材として高価なPCTFEフィルムを用いることなく、安価で実用に供しえる耐湿性に優れたELランプの開発を目的とし鋭意検討した結果、従来、個々には公知の物質を組み合わせ複層し用いる場合には、PCTFEフィルムを用いなくとも十分実用に供し得る耐湿性に優れたELランプが提供できることを見出し、本発明を完成するに至った。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】 即ち、本発明は、背面電極上に絶縁層、発光層、透明電極層を積層してなるELランプにおいて、発光層に使用する蛍光体として無機耐水性物質で被覆した蛍光体を用い、かつ透明電極層より上面に（a）吸水性物質よりなる層、（b）50重量%以上のエチレン、3～50重量%の $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸及び／またはその塩、及び0～40重量%のビニル基含有化合物を共重合させてなるエチレン共重合体からなる層および（c）透明性汎用樹脂フィルムよりなる層を配設したことを特徴とする耐湿性ELランプを提供するにある。

【0007】 更には、背面電極上に絶縁層、発光層、透明電極層を積層してなるELランプにおいて、発光層に使用する蛍光体として無機耐水性物質で被覆した蛍光体を用い、かつ透明電極層より上面に（a）吸水性物質よりなる層、（b）50重量%以上のエチレン、3～50重量%の $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸及び／またはその塩、及び0～40重量%のビニル基含有化合物を共重合させてなるエチレン共重合体からなる層、（c）エチレン- $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸エステル共重合体よりなる接着剤層、および（d）透明性汎用樹脂フィルムよりなる層を配設したことを特徴

3

とする耐湿性Eランプを提供するにある。

【0008】以下、本発明を更に詳細に説明する。本発明に適用するエチレン共重合体は、50重量%のエチレン、3～50重量%の $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸またはその塩、及び0～40重量%のビニル基含有化合物を共重合体させてなるエチレン共重合体であり、該共重合体からは、接着性、耐水性、耐溶剤性、塗膜性、柔軟性に優れた塗膜やフィルムが得られる。

【0009】これら共重合体ならびにその製法は特開昭48-32984号により開示されているが、上記原料のうち $\alpha$ 、 $\beta$ -オレフィン性不飽和カルボン酸としては、不飽和直鎖または環状鎖を有するモノカルボン酸およびジカルボン酸、例えばアクリル酸、メタアクリル酸、クロトン酸、イタコン酸、クエン酸、マレイン酸、フマル酸などがあり、これらは単独または混合して使用することができる。

【0010】ビニル基含有化合物としてはビニルエステル例えばビニルホルメート、ビニルアセテート、ビニルクロロアセテート、ビニルグリコレート、ビニルシアノアセテート、ビニルプロピオネート、ビニルブチレートなど、炭素数1個～12個のアルコールとアクリル酸、メタアクリル酸、イタコン酸、クエン酸、クロトン酸、マレイン酸及びフマル酸とのエステル、及びビニルクロライド、ビニリデンクロライド、アクリルアミド、アクリロニトリルなどが挙げられ、これらは単独または混合して使用することができる。

【0011】上記原料は通常第三級ブチルアルコール、メタノール、イソプロパノール等の脂肪族アルコール類、アセトン等のケトン類、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類、 $n$ -ヘキサン、シクロヘキサン等の飽和炭化水素類、および水の単独或いは混合物よりなる溶媒中で $\gamma$ 線、電子線などの電離性放射線照射して重合を開始させ、重合圧力10気圧～500気圧、重合温度100℃以下で行えばよい。

【0012】上記製法により得られた共重合体は通常自己乳化性エマルジョンの水性液及び/またはアルコール性液として、これを塗布、乾燥し使用される。該共重合体を自己乳化性にするには重合体中に含まれるカルボン酸を塩基性物質によって、化学量論的に30%～100%、好ましくは60%～100%、とくに好ましくは80%～100%中和してやればよい。

【0013】中和に用いる塩基性物質としては、水に溶解して塩基として作用する、例えばアンモニウム及び水酸化アンモニウム、アンモニウム塩例えば 磷酸塩、酢酸塩、炭酸塩、重炭酸塩など、及び 有機アミン類またはその誘導体例えばモノー、ジー、トリメチルアミン、エチルアミン類、イソプロピルアミン類、ブチルアミン類、エタノールアミン類、イソプロパノールアミン類、ジメチルアミノエタノール、ジエチルアミノエタノール、モノメチルアミノエタノール、モノエチルアミノエ

4

タノール、ジメチルアミノイソプロパノール、ジエチルアミノイソプロパノールなどがある。

【0014】このような本発明に適用する上記共重合体よりなる自己乳化性エマルジョンの水性液としては、住友精化株式会社より市販されている「商標名；ザイクセン」シリーズが挙げられる。

【0015】また、本発明に用いるエチレン共重合体は他の化合物と共に水性塗料組成物として用いる事もできる。これら水性塗料組成物は具体的には特開昭49-94725号に開示されている如く、

(イ) 少なくとも50モル%のエチレンと少なくとも4モル%の $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸及び/またはそのアンモニウム塩とからなる共重合体を1～40重量%

(ロ) 1分子中に少なくとも2個のメチロール基を有するメチロールメラミンを0.5～50重量%

(ハ) 一般式 $R-O-R'$  (式中のRは炭素数1～5個の脂肪族炭化水素残基を表わし、R'はH、HCO-、RCO-、C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>CO-を表わす)で示される化合物を0～60重量%

(ニ) アクリル酸塩及びアクリル酸アミドの単独または混合物を0～30重量%

(ホ) 残部が水、

の上記(イ)～(ホ)からなる水性塗料用組成物が挙げられる。上記水性塗料用組成物より得られた塗膜は、塗膜硬度、光沢、耐水性、耐蝕性、更には密着性に優れている。

【0016】本発明において使用される前記共重合体は様々な方法で製造可能であるが、例えばジベンゾイルパーオキシドの如きラジカル開始剤を触媒として150～250℃、1000kg/cm<sup>2</sup>～2000kg/cm<sup>2</sup>の範囲でエチレンと $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸とを共重合して得られる。

【0017】また、エチレンと $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸エステルの共重合体を有機溶剤中アルカリにてケン化することによっても得られる。

【0018】本発明で使用する $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸のアンモニウム塩を含む共重合体は、上記の如くして得られたエチレンと $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸の共重合体を、該共重合体が安定なエマルジョンを形成するに充分な量のアンモニア水及び水の存在において、少なくとも60℃、好ましくは80℃以上の温度で製造することができる。

【0019】エチレン- $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸共重合体を安定なエマルジョンに変化させるに充分なアンモニアの量は、該共重合体の全構成単量体単位に対し、少なくとも4モル%以上、共重合体中のエチレン単位含有量は、少なくとも50モル%以上である

【0020】本発明で使用する共重合体を構成する $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸としては、炭素原子3

～8個を有するものが望ましく、その例はアクリル酸、メタアクリル酸、エタアクリル酸などのモノカルボン酸、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸などのジカルボン酸などである。

【0021】本発明に用いられる共重合体は必ずしも、前記2成分からのみなる必要はない。この共重合体のエチレン及び $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸の各単位の含有率は少なくともそれぞれ50モル%及び4モル%であるが、これら2成分の他に共重合可能な単量体を用いてもよい。この付加的な共重合可能な単量体としてはアクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタアクリル酸メチルなどの $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸のエステル及びギ酸ビニル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニルなどのカルボン酸ビニルエステルがある。

【0022】本発明で使用する水性塗料組成物の構成成分の中(ロ)のメチロールメラミンは1分子中に少なくとも2個のメチロール基を有することが必要である。また、メチロール基としてはメトキシ化されたものでも使用し得る。

【0023】本発明で使用する水性塗料組成物は上記エチレン- $\alpha$ 、 $\beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸及び/またはそのアンモニウム塩から成る共重合体及び、メチロールメラミンを所定量含み、残りは水を加えて任意の方法で混合することにより得られるが、高速攪拌例えば、ホモジナイザーのごとき混合槽により混合するのが好ましく、便利な方法である。

【0024】上記のようにして調製した水性塗料組成物に、更に一般式 $R-O-R'$ (式中のRは炭素数1～5個の脂肪族炭化水素残基を表わし、R'はH、HCO-、RCO-、C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>CO-を表わす)で示される化合物を60重量%以下の量、好ましくは5～50重量%加えることにより、水性塗料の被塗装体への湿潤性が著しく改良される。

【0025】ここで一般式 $R-O-R'$ で表わされる化合物の例としてはメタノール、エタノール、イソプロパノール、n-プロパノール、イソブタノール、tert-ブタノール、sec-ブタノール、イソアミルアルコール、n-アミルアルコール及びn-ブタノール等の脂肪族炭化水素の一価アルコール類、ギ酸メチル、ギ酸エチル、ギ酸イソプロピル等のギ酸エステル類、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸イソプロピル等の酢酸エステル類、安息香酸メチル、安息香酸エチル、安息香酸イソプロピル等の安息香酸エステル類がある。

【0026】また、上記 $R-O-R'$ で示される化合物の添加の有無にかかわらず、上記で規定する水性塗料組成物に、アクリル酸アンモニウム及びアクリル酸アミドの単独または混合物を30重量%以下の量、好ましくは5～20重量%加えることにより、塗膜の硬度、光沢、耐水性ならびに耐蝕性に加えてさらに塗膜の被塗装体への密着性が著しく向上する。

【0027】このような本発明に適用するエチレン共重合体を含有する水性塗料用組成物としては、住友精化株式会社より市販されている「商標名；ザイクセン」シリーズが挙げられる。

【0028】これらエチレン共重合体及び該エチレン共重合体を含有する水性塗料用組成物は透明電極の上に、波長領域400nm～760nmでの全光線透過率85%以上の透明性汎用フィルムと併用される。併用方法としては透明性汎用フィルム上或いは該フィルム下面に上記エチレン共重合体或いは該エチレン共重合体よりなる水性塗料用組成物を塗布し複合層として使用するか、或いは上記エチレン共重合体或いはその水性塗料用組成物により予め形成したフィルムを透明性汎用フィルムと積層し使用するのが一般的であるが、発光層と透明電極間、透明電極と吸水性樹脂フィルム及び/または透明性汎用フィルム間、更には透明性汎用フィルムと透明性汎用フィルム間にフィルムとして、或いは接着剤として層を形成するように使用すればよく、発光層の上面に該共重合体或いは水性塗料用組成物が層を形成していればよい。それらエチレン共重合体或いはその水性塗料用組成物よりなる層は単層、複層のいずれであってもよい。

【0029】エチレン共重合体或いはその水性塗料用組成物よりなる層と透明性汎用フィルムとのより強固な接着強度を付与する目的で従来公知の接着剤を使用することもできる。適用される接着剤は特に制限されないが、透明性汎用樹脂フィルムとしてポリプロピレン、ポリエチレン、ポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート等のフィルムを使用する場合には、接着剤としてエチレン- $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸エステル系共重合体が挙げられる。

【0030】具体的にはエチレン約50重量%以上、 $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸エステル約0.01重量%～約50重量%よりなるエチレン- $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸エステル系共重合体であり、より具体的にはエチレン約70重量%～約95重量%および $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸エステル約5重量%～約30重量%よりなる共重合体、エチレン約65重量%～約95重量%、 $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸エステル約5重量%～約35重量%および無水マレイン酸約0.5重量%～約5重量%よりなる共重合体、エチレン約70重量%～約99重量%および $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸グリシジルエステル約0.01重量%～約30重量%、カルボン酸ビニルエステルまたは $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステル約1重量%～約20重量%よりなる共重合体等が使用される。

【0031】また必要に応じて上記共重合体或いは水性塗料用組成物の層を発光層とは反対側の背面電極の上面にも配設してもよい。

【0032】該接着樹脂に使用される $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸エステルは、炭素数が3～8個の $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸、例えばアクリル酸、メタクリル酸等のアルキ

7

ルエステルであって、具体例としてはアクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸n-プロピル、アクリル酸イソプロピル、アクリル酸ブチル、アクリル酸tert-ブチル、アクリル酸イソブチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸n-プロピル、メタクリル酸イソプロピル、メタクリル酸n-ブチル、メタクリル酸tert-ブチル、メタクリル酸イソブチル等であり、 $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸グリシジルエステルとしてはグリシジルアクリレート、グリシジルメタアクリレート、イタコン酸グリシジルエステル等、またカルボン酸ビニルエステルとしてはギ酸ビニル、酢酸ビニル及びプロピオン酸ビニル等である。

【0033】本発明に用いる透明性汎用フィルムは波長領域400nm～760nmでの全光線透過率85%以上であり、透湿度が $1\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ hr}$ 以下(250 $\mu\text{m}$ )以下であればよく、このようなフィルムとしては既にこの分野で使用されているポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリビニルアルコール、ポリアミド、セルロースアセテート、ポリ塩化ビニリデン、ポリ弗化ビニル、ポリ弗化ビニリデン、ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリメタクリル酸メチルおよびポリエチレンテレフタレートより選ばれる少なくとも1種が使用される。

【0034】ELランプとしての可撓性を損なわない範囲において該透明性汎用フィルムの使用膜厚は任意であるが、通常ELランプの製品厚は約1mm以下であるので共重合体或いは水性塗料用組成物と合わせて0.5mm以内、好ましくは0.3mm以内の範囲で行えばよい。

【0035】本発明のELランプは背面電極上に絶縁層、発光層及び透明電極を積層してEL素子を構成し、これに耐水性を有する上記エチレン共重合体或いはこれを含む水性塗料用組成物よりなる層および透明性汎用フィルムで被包し周縁部を圧着封止することにより構成されるが、耐湿性を向上せしめる目的から透明電極層の上面に吸水性物質よりなる層を配設する。

【0036】吸水性物質よりなる層とはシリカゲル、モレキュラシーブ、或いはこれを樹脂中に分散含有してなるフィルム、ナイロン、高吸水性樹脂等が挙げられるが、捕水能力や吸水時の発熱がない点、さらには長期使用におけるフィルムの変色による輝度障害がない等の点から高吸水性樹脂の使用が推奨される。

【0037】高吸水性樹脂としては特に制限されるものではないが、市販のビニルアルコールとアクリル酸の共重合体、ポリエチレンオキサイド系重合体或いはアクリル酸ソーダの共重合体、デンプン-アクリル酸共重合体、デンプン-アクリロニトリル共重合体、イソブチレン-マレイン酸共重合体、酢酸ビニル-不飽和ジカルボン酸共重合体等が使用される。

【0038】これら高吸水性樹脂は単独でフィルムを形成することもできるし、高吸水性樹脂をトルエン等の有

8

機溶媒で溶解させたものをスクリーン印刷等により直接ポリエステルやナイロンフィルム上に塗布し乾燥したものを使用してもよいし、ポリエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-アクリル酸エチル共重合体、エチレン-マレイン酸共重合体、ポリプロピレン、ナイロン、ポリエステル等の汎用樹脂中に高吸水性樹脂粉末を分散しフィルム化してもよく、勿論粉末の層として用いてもよい。

【0039】吸水性物質よりなる層の厚みは特に制限されるものではないが、薄すぎるとピンホールや破れなどの欠陥が生じて十分な吸湿効果が期待できず、また強度も弱く作業性の点からも好ましくない、他方あまり厚い場合には可撓性が低下する等の不都合を生じるので、通常約3 $\mu\text{m}$ ～約200 $\mu\text{m}$ 、好ましくは約10 $\mu\text{m}$ ～約150 $\mu\text{m}$ の範囲で使用される。

【0040】本発明のELランプは通常アルミニウムのような導電性の良好な金属薄板よりなる背面電極上にチタン酸バリウムのような強誘電体粉末を有機バインダーに分散させてスラリー状にし、これをスクリーン印刷等の方法で塗布して絶縁層を設け、絶縁層上にシアノエチルセルロースのような有機バインダーに硫化亜鉛を主成分とする蛍光体粉末を分散させたものを塗布することにより発光層を設け、さらに発光層上にポリエステルフィルムのような透明フィルム上にインジウム・錫化合物(ITO)を蒸着もしくはスパッタリングによって被着したものを積層、或いはITOを有機バインダーに分散させたものを塗布したものを積層して透明電極層を配設しEL素子を構成している。しかして、本発明は該EL素子を上記共重合体或いは水性塗料用組成物により被包するものであるがより耐湿性を向上せしめる方法として上記発光層を構成する蛍光体として耐水性無機物質で被覆処理した蛍光体の使用が推奨される。

【0041】かかる耐水性無機物質としてリン酸塩が挙げられる。これらリン酸塩としてはマグネシウム、カルシウム、ストロンチウム及びバリウムから選ばれた少なくとも1種の金属よりなるリン酸塩、就中マグネシウム及びカルシウム金属よりなるリン酸塩が挙げられ、これらは使用する蛍光体の粒径、粒度分布等により一義的ではないが、通常蛍光体の平均粒子径が約3 $\mu\text{m}$ ～約60 $\mu\text{m}$ の範囲であれば約0.005 $\mu\text{m}$ ～約1 $\mu\text{m}$ の被覆厚みで実施すればよい。これらリン酸塩の蛍光体への具体的な被覆方法は特開平1-315485号公報に記載の方法を用いればよい。

【0042】またリン酸塩以外の耐水性無機物質としては酸化アルミニウム、酸化珪素、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化イットリウム、および酸化亜鉛等の金属酸化物の少なくとも1種、珪酸マグネシウム、珪酸カルシウム、珪酸ストロンチウム及び珪酸バリウム等の珪酸アルカリ土類塩の少なくとも1種、ポリリン酸、ポリ塩化アルミニウム、ポリ酸化珪素、ポリ酸化チタン等の無機

ポリマーの少なくとも1種、チタン酸マグネシウム、チタン酸カルシウム、チタン酸バリウム、チタン酸鉛、チタン酸バリウムストロンチウム、ジルコニウムチタン酸鉛及びランタニウムジルコニウムチタン酸鉛等のチタン酸塩の少なくとも1種が挙げられる。被覆厚みは上記磷酸塩と同一範囲であればよい。

【0043】上記耐水性無機物質での被覆蛍光体はさらに耐湿性を向上せしめる目的でプラズマ処理等により急速加熱し該被覆物質の少なくとも表面を溶融後固化し使用することもできる。これら処理方法の詳細は特願平2-304650号を参考とすればよい。

【0044】

【発明の効果】以上詳述したように本発明のELランプは、従来防湿用フィルムとして公知のPCTFEフィルムに代え、蛍光体として耐水性無機物質で被覆した蛍光体を用い、吸水性物質よりなる層と特定のエチレン共重合体及び該エチレン共重合体を含有する水性塗料用組成物よりなる層並びに透明性汎用樹脂フィルムを併用することによりPCTFEフィルムを用いたと同様の耐水性を発揮する。

【0045】また本発明において用いる透明性汎用樹脂フィルムは波長領域400nm〜760nmでの全光線透過率は85%以上のものが一般的であり、また上述した特定のエチレン共重合体及び該エチレン共重合体を含有する水性塗料用組成物や高吸水性樹脂フィルムも透明度が高いので、ELランプ構成後の発光層から最上面のフィルムまでの上記波長領域における全光線透過率を85%以上にすることが可能であり、従来耐湿性ELランプとして最も一般的な吸湿性フィルムとしてナイロンフィルムを用い、防湿フィルムとしてPCTFEフィルムを使用したELランプに比較し初期輝度が高いのは勿論のこと、経時的輝度低下も少ない等の長所を有する。

【0046】従って、従来のELランプに比べて廉価にもかかわらずPCTFEフィルムを用いたと同様、或いはそれ以上の耐水性効果を発揮するので、長寿命ELランプとして、例えばCPUディスプレイ用バックライトは勿論、産業機器用パネルライト、航空機用パネルライト、自動車用内外装パネルライト、船舶用パネルライト、雪上車または電車用パネルライト、屋内外防災表示板用、或いは装飾用パネルライト等各種パネルライト、照明玩具、常夜灯、ムードランプ等の日用雑貨としてのあらゆる用途に適用可能であり、その工業的価値は頗る大である。

【0047】

【実施例】以下、実施例により本発明を更に詳細に説明するが、該実施例は本発明の一実施態様を説明するものであり、これにより何ら制限を受けるものではない。

【0048】尚実施例、比較例において用いた可視光積算透過率試験、防湿接着フィルムの透湿度試験及び高温高湿寿命試験の耐湿性試験結果は以下の方法により行

た。

【0049】可視光積算透過率試験：EL素子の発光層上に構成された全積層フィルムの分光透過率を、日立330型分光光度計50φ積分球受光により測定し、可視光線領域（波長400nm〜760nm）の透過分率を積算して第1表に示した。

【0050】耐湿性試験：ELランプを温度40℃、湿度95〜98%RHの恒温恒湿槽内において、115V・400Hzで駆動、連続点灯して試験し、24時間後の吸湿量を透湿度〔g/m<sup>2</sup>・24Hr〕として示し、初期輝度に対し半減輝度迄低下した点灯時間を半減寿命〔hr〕とし、又これらの初期輝度は比較例1を100とした比率〔%〕で、各々表1に示した。

【0051】実施例1（蛍光体へのリン酸塩被覆）1リットルのセパラブルフラスコ内に脱イオン水200mlと市販硫化亜鉛系EL蛍光体100g（平均粒径30μmφ）を添加し、これを50〜60℃に加熱しバドル攪拌翼で攪拌維持した蛍光体分散スラリー中に、りん酸三アンモニウム水溶液（りん酸三アンモニウム3水塩1.42gを脱イオン水に溶解して100mlとした水溶液）と金属塩水溶液（塩化マグネシウム6水塩1.06gと塩化カルシウム2水塩0.77gを脱イオン水に溶解して100mlとした水溶液）を添加速度0.83ml/分で、スラリー中のpHが6〜8の範囲になるよう調整（水酸化ナトリウム水溶液を添加）しつつ2時間で添加し、次いでスラリー温度を約90℃〜約100℃に加熱して、攪拌継続下1時間保持した後、室温まで冷却した。

【0052】得られたりん酸塩被覆EL蛍光体を固液分離後、脱イオン水で洗浄し、温度130℃で1時間乾燥し解砕した後、更に電気炉にて温度150℃1時間、更に250℃1時間焼成してりん酸マグネシウムカルシウム被覆（蛍光体100重量部に対し0.9重量部被覆）EL蛍光体を得た。

【0053】（防湿性フィルムの製作）厚み60μmの透明ポリプロピレンフィルム（商標名；二軸延伸OPP/住友化学工業株式会社製）に厚み50μmのエチレン-メタアクリル酸メチル共重合体系化合物よりなる接着性フィルム（商標名；アクリフトWH302/住友化学工業株式会社製）を積層したものを二層重ねて積層し、さらにこの上部にエチレン共重合体よりなる水性塗料（商標名；ザイクセンA-C/住友精化株式会社製）をバーコーター法により塗工し、100℃40分間乾燥して該厚みを50μmの塗膜となし、ポリプロピレンアクリフト-ポリプロピレンアクリフト-ザイクセンの五層から成る防湿フィルムを得た。

【0054】（ELパネルの製作）背面電極としてのアルミニウム薄板上にBaTiO<sub>3</sub>と高誘電率セルロース系樹脂組成物よりなる絶縁層を形成し、その上に高誘電率セルロース系樹脂（誘電率28）15部、ジメチルホ

ルムアミド45部と上記方法で得たりん酸マグネシウムカルシウム被覆蛍光体40部を混合し、ドクターブレード法により塗工した後、温度130℃で10分間加熱乾燥し、厚み50μmの蛍光体層を形成し、その上にITO透明電極を構成し、各々の電極にリードを取り付けてEL素子とした。

【0055】次に厚み60μmの高吸水性樹脂フィルム（商標名：スミカゲル／住友化学工業株式会社製）でEL素子を背面電極下部と透明電極上部より挟む如く配設し、吸水性物質よりなる層を構成し、更に前記方法で得たポリブローアクリフトーザイクセンよりなる防湿性フィルムでEL素子全体を被包し周端部を加熱圧着することによりELランプを製作した。

【0056】以上の如くして得られたELランプの耐湿性試験を行った。その結果を第1表に示す。又、別に発光面上に配設された吸湿性物質よりなる層及び防湿フィルムとの積層フィルムの可視光線透過率を測定した。その結果を表1に示す。

#### 【0057】実施例2

防湿性フィルムとして、厚み300μmの透明ポリプロピレンフィルム（PTP1-3#300／東レ株式会社製）に、厚み50μmのエチレンーアクリル酸エチル無水マレイン酸共重合体系化合物の接着性フィルム（商標名：ボンダインTX8030／住友化学工業株式会社製）を積層し、更に、エチレン共重合体よりなるアルコール性塗料（商標名：ザイクセンA-TH／住友精化株式会社製）をバーコーター法により塗工し、100℃40分間乾燥して該厚み20μmの塗膜となしたポリブローボンダインーザイクセンの三層から成る防湿フィルムを用いた他は実施例1と同様にしてELランプを製作した。

【0058】得られたELランプの耐湿性試験並びに発光面上に配設された吸湿性物質よりなる層及び防湿フィルムとの積層フィルムの可視光線透過率を測定した。その結果を表1に示す。

#### 【0059】比較例1

実施例1の方法において蛍光体として市販蛍光体をそのまま使用し、また吸湿性フィルムを高吸水性樹脂より市販のナイロンフィルム（商標名：ダイアミドZS105／ダイセル化学工業株式会社製；厚み110μm）、防湿性フィルムを市販の弗素樹脂フィルムPCTFE（商標名：ニトフロン#4810／日東電工株式会社製；厚み250μm）に代えた他は全く同様にしてELランプを製作した。

【0060】得られたELランプの耐湿性試験並びに発光面上に配設された吸湿性物質よりなる層及び防湿フィルムとの積層フィルムの可視光線透過率を測定した。その結果を表1に示す。

#### 【0061】実施例3

防湿性フィルムとして、厚み250μmの透明ポリプロ

ピレンフィルム（商標名：PTP1-3#250／東レ株式会社製）に、厚み50μmのエチレンーアクリル酸エチル共重合体系化合物の接着性フィルム（商標名：アクリフトWH302／住友化学工業株式会社製）を積層し、更にエチレン共重合体よりなるアルコール性塗料（商標名：ザイクセンA-C／住友精化株式会社製）をバーコーター法により塗工し、100℃40分間乾燥して該厚み20μmの塗膜となしたポリブローアクリフトーザイクセンの三層から成る防湿フィルムを用いた他は実施例1と同様にしてELランプを製作した。

【0062】得られたELランプの耐湿性試験並びに発光面上に配設された吸湿性物質よりなる層及び防湿フィルムとの積層フィルムの可視光線透過率を測定した。その結果を表1に示す。

#### 【0063】実施例4

防湿性フィルムとして、厚み300μmの透明ポリカーボネートフィルム（商標名：カリバー300-6ウォーターホワイト／住友ノーガタック株式会社製）に、厚み50μmのエチレンーメタクリル酸グリシジル酢酸ビニル共重合体系化合物の接着性フィルム（商標名：ボンドファースト7B／住友化学工業株式会社製）を積層し、更にエチレン共重合体よりなるアルコール性塗料（商標名：ザイクセンA-TH／住友精化株式会社製）をバーコーター法により塗工し、100℃40分間乾燥して該厚み20μmの塗膜となしたポリカーボネートボンドファーストーザイクセンの三層から成る防湿フィルムを用いた他は実施例1と同様にしてELランプを製作した。

【0064】得られたELランプの耐湿性試験並びに発光面上に配設された吸湿性物質よりなる層及び防湿フィルムとの積層フィルムの可視光線透過率を測定した。その結果を表1に示す。

#### 【0065】実施例5

防湿性フィルムとして、厚み250μmの透明ポリエチレンテレフタレートフィルム（商標名：PET-HW／帝人株式会社製）に、厚み50μmのエチレンーアクリル酸エチル無水マレイン酸共重合体系化合物の接着性フィルム（商標名：ボンダインTX8030／住友化学工業株式会社製）を積層し、更に、エチレン共重合体よりなる水性塗料（商標名：ザイクセンA-TH／住友精化株式会社製）をバーコーター法により塗工し、100℃40分間乾燥して該厚み20μmの塗膜となしたポリエチレンテレフタレートボンダインーザイクセンの三層から成る防湿フィルムを用いた他は実施例1と同様にしてELランプを製作した。

【0066】得られたELランプの耐湿性試験並びに発光面上に配設された吸湿性物質よりなる層及び防湿フィルムとの積層フィルムの可視光線透過率を測定した。その結果を表1に示す。

#### 【0067】比較例2～6



実施例1において、リン酸塩被覆蛍光体に代えて市販の蛍光体をそのまま使用した他は実施例1と同様にしてELランプを製作した。(比較例2)又、実施例1において、リン酸塩被覆蛍光体に代えて市販の蛍光体をそのまま使用し、かつ高吸水性樹脂フィルム層を配設しない他は実施例1と同様にしてELランプを製作した。(比較例3)

【0068】さらに実施例1及び2において用いた防湿フィルムに代えて、ザイクセンを使用していない4層或いは2層フィルムを用いた他は実施例1及び2と同様に

してELランプを製作した。(比較例4～5)

【0069】また実施例2において用いた防湿フィルムに代えて、ザイクセンを使用せず、厚み300 $\mu$ mの透明ポリプロピレンフィルム(商標名; PTP1-3#300/東レ株式会社製)に厚み70 $\mu$ mのボンダインTX8030を積層して用いた他は実施例2と同様にしてELランプを製作した。(比較例6)

【0070】得られたELランプの耐湿性試験を行った。その結果を表1に示す。

【0071】

(表1)

例	可視光線積算 透過率 [%]	耐 湿 試 験		
		初期輝度 [%]	透 湿 度 [g/m <sup>2</sup> ・D]	半減寿命 [hr]
実施例1	88	106	0.2	700
実施例2	88	106	0.2	700
実施例3	88	106	0.3	650
実施例4	89	107	0.3	650
実施例5	86	105	0.3	650
比較例1	78	100	0.1	600
比較例2	—	113	0.3	400
比較例3	—	113	0.3	300
比較例4	—	106	0.4	500
比較例5	—	106	0.4	520
比較例6	—	106	0.4	520